

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-283751

(43)Date of publication of application : 15.10.1999

(51)Int.Cl. H05B 33/22
H05B 33/02
H05B 33/14
H05B 33/26

(21)Application number : 10-081860 (71)Applicant : NEC CORP

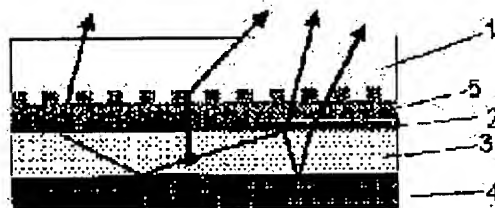
(22)Date of filing : 27.03.1998 (72)Inventor : ODA ATSUSHI
ISHIKAWA HITOSHI
AZUMAGUCHI TATSU

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve light extraction efficiency by forming a diffraction grating or a zone plate as a constituent at a position to restrain total reflection on the interface of an element.

SOLUTION: When a transmissive diffraction grating is used, after a diffraction grating 5 is formed on a substrate 1, an element where a positive electrode 2, an organic layer 3 and a negative electrode 4 are sequentially laminated is formed. Although a light entering into the diffraction grating 5 is divided into a transmitted light ray and a reflected light ray, the outgoing angle of the reflected light ray is made smaller and the reflected light ray is inputted at a small incident angle again by the reflection of the negative electrode 4, so that it can be extracted to the outside of the element finally. It is preferable that the positive electrode 2 and the negative electrode 4 form the same picture element, one of the electrodes reflects visible light and the diffraction grating 5 or a zone plate is formed on this reflective electrode. In addition, it is preferable that the positive electrode 2 and the negative electrode 4 form the same picture element, one of the electrodes reflects visible light and the diffraction grating 5 or a zone plate is formed on the other electrode or between the other electrode and the light extracting plane at a position



to restrain total reflection on the interface of the element.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 27.03.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 2991183

[Date of registration] 15.10.1999

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-283751

(43) 公開日 平成11年(1999)10月15日

(51) Int.Cl. ⁴	識別記号	P I	
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	Z
33/02		33/02	
33/14		33/14	A
33/26		33/26	Z

審査請求 有 請求項の数 8 O L (全 11 頁)

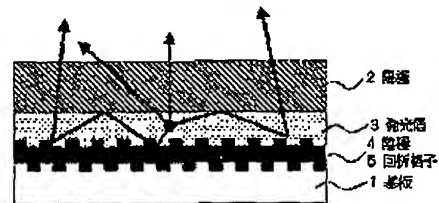
(21) 出願番号	特願平10-81860	(71) 出願人	000004237 日本電気株式会社 東京都港区芝五丁目7番1号
(22) 出願日	平成10年(1998)3月27日	(72) 発明者	小田 敦 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内
		(72) 発明者	石川 仁志 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内
		(72) 発明者	東口 達 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内
		(74) 代理人	弁理士 若林 忠 (外4名)

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 高効率な有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構成として、陰極反射面又は光取出し面側に回折格子を形成し、光の取り出し効率を向上させる。



(2)

特開平11-283751

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極と陰極間に発光層を含む一層以上の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、回折格子又はゾーンプレートを構成要素とすることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 上記陽極および陰極が同一画素を形成し、これら両電極のうち、少なくとも一方の電極が可視光を反射する電極であり、この反射電極に回折格子又はゾーンプレートが形成されている請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 上記素子構造が基板、回折格子又はゾーンプレート、反射電極、有機層、透明電極の順に積層した構造を持つことを特徴とする請求項2記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 上記陽極および陰極が同一画素を形成し、これら陽極又は陰極のうち、少なくとも一方の電極が可視光を反射する電極であり、透明電極側に回折格子又はゾーンプレートが形成されていることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 上記素子が透明基板、回折格子又はゾーンプレート、透明電極、有機層、反射電極の順に積層された構造を持つことを特徴とする請求項4記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 上記回折格子又はゾーンプレートが遮光部分を持たないことを特徴とする請求項4又は5記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 前記回折格子が二次元周期を持つことを特徴とする請求項1ないし6記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、発光効率に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0002】

【従来の技術】有機エレクトロルミネッセンス素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより発光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。

C. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機エレクトロルミネッセンス素子の報告(C. W. Tang, S. A. VanSlyke, アプライドフィジックスレターズ(Applied Physics Letters), 51巻, 913頁, 1987年など)がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機エレクトロルミネッセンス素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス(8-キノリノール)アルミニウムを発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生

2

成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じこめることなどが挙げられる。この例のように有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造としては、正孔輸送(注入)層、電子輸送性発光層の2層型、又は正孔輸送(注入)層、発光層、電子輸送(注入)層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

【0003】しかしながら、有機エレクトロルミネッセンス素子においてはキャリア再結合の際にスピン統計の依存性より一重項生成の確率に制限があり、したがって発光確率に上限が生じる。この上限の値は凡そ25%と知られている。更に有機エレクトロルミネッセンス素子においてはその発光体の屈折率の影響のため、図1に示すように、臨界角以上の射出角の光は全反射を起こし外部に取り出すことができない。このため発光体の屈折率が1.6とすると、発光量全体の20%程度しか有効に利用できず、エネルギーの変換効率の限界としては一重項生成確率を併せ全体で5%程度と低効率とならざるをえない(筒井哲夫「有機エレクトロルミネッセンスの現状と動向」、月刊ディスプレイ, vol. 1, No. 3, p11, 1995年9月)。発光確率に強い制限の生じる有機エレクトロルミネッセンス素子においては、光の取り出し効率は致命的ともいえる効率の低下を招くことになる。

【0004】この光の取り出し効率を向上させる手法としては、従来無機エレクトロルミネッセンス素子などの、同等な構造を持つ発光素子において検討されてきた。例えば、基板に集光性を持たせることにより効率を向上させる方法(特開昭63-314795)や、素子の側面等に反射面を形成する方法(特開平1-220394)が提案されている。しかしながら、これらの方法は、発光面積の大きな素子に対しては有効であるが、ドットマトリクスディスプレイ等の画素面積の微小な素子においては、集光性を持たせるレンズや側面の反射面等の形成加工が困難である。更に有機エレクトロルミネッセンス素子においては発光層の膜厚が数μm以下となるためテーパ状の加工を施し素子側面に反射鏡を形成することは現在の微細加工の技術では困難であり、大幅なコストアップをもたらす。また基板ガラスと発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法(特開昭62-172691)もあるが、この方法は前方への光の取り出し効率の改善の効果はあるが全反射を防ぐことはできない。したがって屈折率の大きな無機エレクトロルミネッセンスに対しては有効であっても、比較的低屈折率の発光体である有機エレクトロルミネッセンス素子に対しては大きな改善効果を上げることとはできない。

【0005】したがって有機エレクトロルミネッセンス素子に有用な光の取り出し方法は未だ不十分であり、こ

(3)

特開平11-283751

3

の光の取り出し方法の開拓が有機エレクトロルミネッセンス素子の高効率化に不可欠である。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、有機エレクトロルミネッセンス素子の光の取り出し効率を改善し、高効率の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】この発明は、前記課題を解決するために、陽極と陰極間に発光層を含む一層又は複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、その素子の構成要素として回折格子あるいはゾーンプレートを含むことを特徴とする。またこの回折格子あるいはゾーンプレートは反射型、透過型の何れでも良く、透過型に於いては遮光部分を設けることによる振幅格子の他に、屈折率の異なる層の膜厚を調整する位相格子を利用することで取出し効率を更に向上させることができる。更に回折格子に於いては二次元周期の格子を用いることで、通常のストライプ状の回折格子に比べ、ストライプに平行な方向の光取出しも改善できる。

【0008】すなわち、本発明は次のようである。

【0009】1. 陽極と陰極間に発光層を含む一層以上の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、回折格子又はゾーンプレートを構成要素とすることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0010】2. 上記陽極および陰極が同一画素を形成し、これら両電極のうち、少なくとも一方の電極が可視光を反射する電極であり、この反射電極に回折格子又はゾーンプレートが形成されている上記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0011】3. 上記素子構造が基板、回折格子又はゾーンプレート、反射電極、有機層、透明電極の順に積層した構造を持つことを特徴とする上記2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0012】4. 上記陽極および陰極が同一画素を形成し、これら陽極又は陰極のうち、少なくとも一方の電極が可視光を反射する電極であり、透明電極側に回折格子又はゾーンプレートが形成されていることを特徴とする上記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0013】5. 上記素子が透明基板、回折格子又はゾーンプレート、透明電極、有機層、反射電極の順に積層された構造を持つことを特徴とする上記4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0014】6. 上記回折格子又はゾーンプレートが遮光部分を持たないことを特徴とする上記4又は5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0015】7. 前記回折格子が二次元周期を持つことを特徴とする上記1ないし6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0016】

4

【発明の実施の形態】まず本発明の原理を説明する。有機エレクトロルミネッセンス素子においては、その発光層を含む有機層の屈折率がガラス等の基板材料屈折率に比べ高いため基板界面上で全反射を起こし発光した全ての光を取り出すことはできない。また、基板反対面方向より光を取り出す場合では、大気屈折率との差によりやはり素子界面で全反射を起こすことになる。この全反射を抑制する目的で基板界面あるいは反射面に回折格子を形成し、光取出し面に対する光の入射角を変化させることにより光の取出し効率を向上させることが本発明の原理である。

【0017】図3に示すように回折格子に入射角 α で入射した光は出射角 β と格子間隔 d 、光の波長 λ 、屈折率 n 、回折次数 k との間に式1の関係があることが知られている。

【0018】

【数1】

$$d(\sin\alpha - \sin\beta) = \frac{k\lambda}{n}$$

したがって格子間隔 d を適当に調整することにより全反射臨界角以上の入射角の光を臨界角以下に変化させることができる。例えば、屈折率1.7の有機材料を前提にした場合、全反射臨界角は36.0度となる。図4に格子間隔が2 μ mの反射型の回折格子に波長500nmの光が入射した時の出射角を示すが、この図から出射角が36度以内になるには入射角は1次回折で46度、2次回折で60度、3次回折では全角度範囲であることが分かる。この場合、図1に示すような素子構造、すなわち基板1の面上に反射型の回折格子5を形成し陰極4を兼用し、その上に有機層3、透明電極による陽極2を形成する構造において、反射面として回折格子が形成されているため、透明電極2と素子外部の界面で全反射した入射角36度以上の光はその大半を36度以下の出射角を持ち再び透明電極と素子外部の界面に達し、全反射を起こすことなく外部に取り出される。1次回折により36度以上のまま反射される成分は再び透明電極と素子外部の界面で全反射され回折格子に再入射する。この過程を繰返すことで最終的にはほぼすべての光が素子外部に取り出されることになる。ここに用いる反射型の回折格子は、回折格子としての機能を有するものであれば如何なる形状のものでも構わない。矩形の断面を持つラミネリ型、あるいはテーパの付いた断面を持つ刃型格子を基板上に形成し、その上に陰極を形成し反射面を兼用してもよい。また、陰極を反射係数の異なる二種の陰極材料よりストライプ状に形成することも、あるいは陰極自身をストライプ状のパターンとして回折格子を形成することも可能である。

【0019】透過型の回折格子を利用する場合は図2に示すように、基板1に回折格子5を形成した後、陽極

2、有機層3、陰極4の順に積層し素子を形成できる。

(4)

特開平11-283751

5

6

この場合透過型回折格子は振幅型、位相型の何れでもかまわず、またその形状もいかなるものでも構わない。例えば位相型の場合、基板面上に溝を形成した後屈折率の異なる透明材料の層を形成しこれを平坦化した後、通常の方法により陽極、有機層、陰極の順に積層することができる。振幅型の場合は基板面上に光を透過しない材料を用いストライプを形成することも、また陽極自身をストライプとすることもできるがこの場合陰極材料自身は透明、不透明の何れでもよい。例えば陽極として金電極を用いこれをストライプ状に加工し、この上に有機層、

【0020】透過型の回折格子を用いた場合には、回折格子へ入射する光は透過光と反射光に分かれるが、反射光の出射角が小さくなり陰極による反射により再び小さい入射角で入射されるため、反射型と同様に最終的には素子外部に取り出すことができる。

【0021】回折格子の寸法としては、目的とするエレクトロルミネッセンス素子の光の波長域に対し取出し効率の向上する範囲にある。エレクトロルミネッセンス素子の波長域は可視光域、すなわち波長350nm～800nmにおいて、格子間隔は目的とする波長の光半長、すなわち波長を屈折率で除した値に対し、図5で示すように大きすぎる場合は角度を低角にする効率が小さく、鏡面での反射が多数回おこり損失が大きくなり、また小さすぎる場合は高角度の入射が高角度の反射となり光を前方に取り出せる割合が低下し、何れも光の取出し効率を低下させるため、0.1倍から10倍の範囲が望ましい。

【0022】通常の回折格子の場合はストライプに平行な方向に対しては回折効果が起らないためこの方向の光取出しを向上させることができない。この点を改良するために二次元の回折格子が使用可能である。あるいは溝のパターンを同心円上に描いた回折格子もまた使用可能である。この場合、同心円上の溝の間隔は周期的であっても図7に示すようなゾーンプレートを形成する間隔規則に則っていてもよい。またこれらの形成法も前記回折格子の場合に準じ、基板の形状を加工する場合、電極自身でパターン化する場合の何れの方法も可能であり、溝の形状等もいかなるものも可能である。

【0023】次に素子の構成要素等について説明する。有機エレクトロルミネッセンス素子における電極は、陽極は正孔を正孔輸送層に注入する役割を担うものであり、4.5eV以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NES

A)、金、銀、白金、銅等の金属又はこれらの酸化物、並びにこれらの混合物が適用できる。また陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金、並びにこれらの混合物等が使用できる。

【0024】ここでこれらの電極は、陽極、陰極のうち何れかの電極が可視光の領域において透明で、もう一方の電極が高反射率を有するものとする。また、これらの電極の厚さは電極として本来の機能を果たす厚さであれば特に限定されることはないが、好ましくは0.02μm～2μmの範囲である。

【0025】本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、上記電極間に有機層を1層あるいは2層以上積層した構造であり、特にその構造に制約を受けない。例としては、①陽極、発光層、陰極、②陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極、③陽極、正孔輸送層、発光層、陰極、又は④陽極、発光層、電子輸送層、陰極等の構造が挙げられる。またこれらの有機層間及び/又は有機層/電極間に、電荷注入特性の向上や絶縁破壊を抑制あるいは発光効率を向上させる目的で、希化リチウム、弗化マグネシウム、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等の無機誘電体、絶縁体からなる薄膜層、有機層と電極材料又は金属との混合層、ポリアニリン、ポリアセチレン誘導体、ポリジアセチレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体等の有機高分子薄膜を挿入しても構わない。

【0026】本発明に用いられる発光材料としては特に限定されず、通常発光材料として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、下記のトリス(8-キノリノール)アルミニウム錯体(A1q3) [1]やビスジフェニルピニルピフェニル(BDPVBi) [2]、1,3-ビス(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾールイル)フェニル(OD-7) [3]、N,N'-ビス(2,5-ジtert-ブチルフェニル)ペリレンテトラカルボン酸ジイミド(BPPC) [4]、1,4-ビス(p-トリル-p-メチルスチルフェニルアミノ)ナフタレン [5] などである。

【0027】

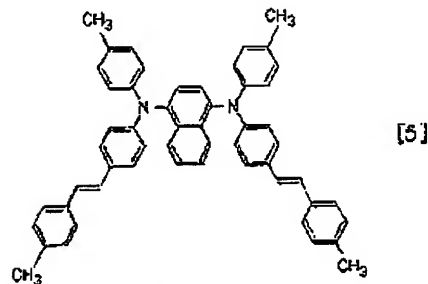
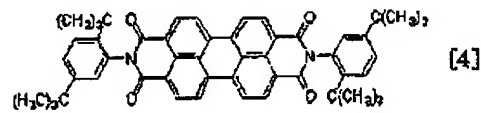
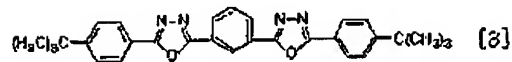
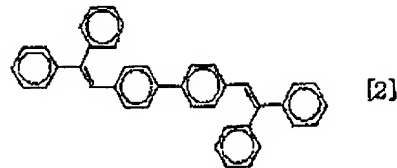
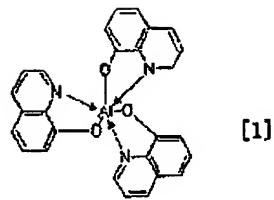
【化1】

(5)

特開平11-283751

8

7



また、電荷輸送材料に蛍光材料をドーブした層を蛍光材料として用いることもできる。例えば、前記のA1q3

[1]などのキノリノール金属錯体に4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノステリル)-4H-ピラン(DCM)[6]、2,3-キナクリドン[7]などのキナクリドン誘導体、3-(2'-ベンゾチアゾール)-7-ジエチルアミノクマリン

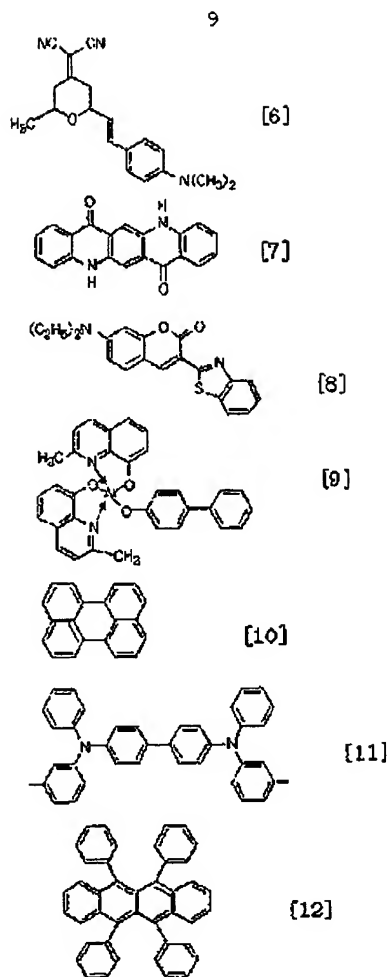
[8]などのクマリン誘導体をドーブした層、あるいは電荷輸送材料ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリン)-4-フェニルフェノール-アルミニウム錯体

40

[9]にペリレン[10]等の縮合多環芳香族をドーブした層、あるいは正孔輸送材料4,4'-ビス(m-トリルフェニルアミノ)ビフェニル(TPD)[11]にルブレン[12]等をドーブした層を用いることができる。

[0028]

[化2]

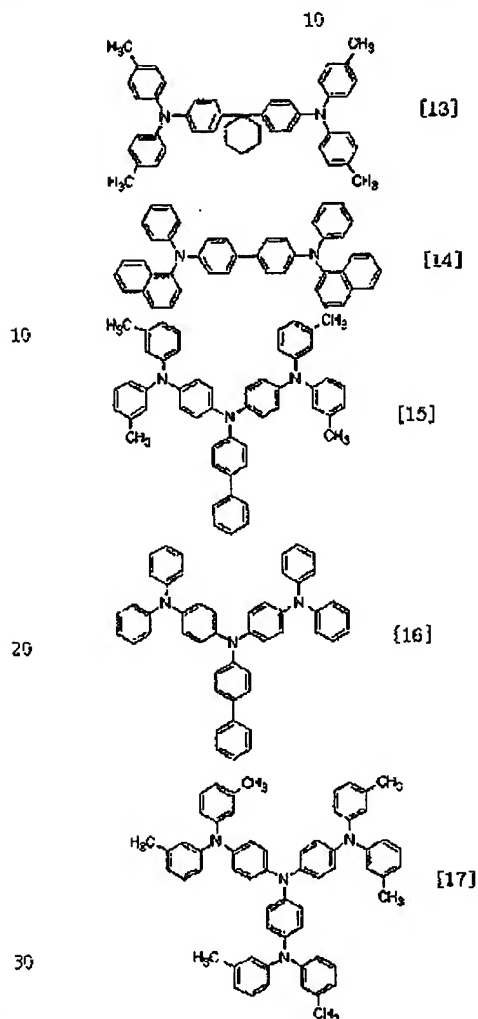


本発明に用いられる正孔輸送材料は特に限定されず、通常正孔輸送材料として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、ビス(ジ(p-トリル)アミノフェニル)-1,1'-シクロヘキサン[13]、TPD[11]、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(NPB)[14]等のトリフェニルジアミン類や、スターバースト型分子([15]~[17]等)等が挙げられる。

[0029]

[化3]

(6) 特開平11-283751



本発明に用いられる電子輸送材料は特に限定されず、通常電子輸送材料として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、2-(4-ヒフェニル)-5-(4-ヒフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(Bu-PBD)[18]、OXD-7[3]等のオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体([19]、[20]等)、キノリノール系の金属錯体([1]、[9]、[21]~[24]等)が挙げられる。

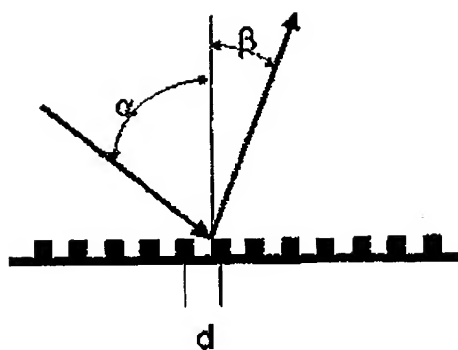
[0030]

[化4]

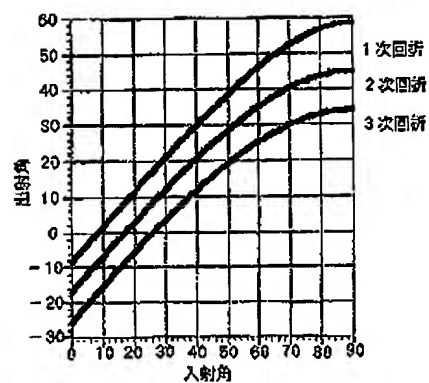
(9)

特開平11-283751

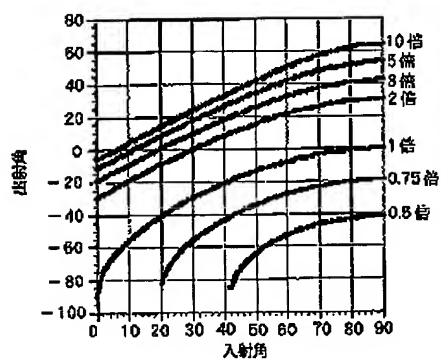
【図3】



【図4】



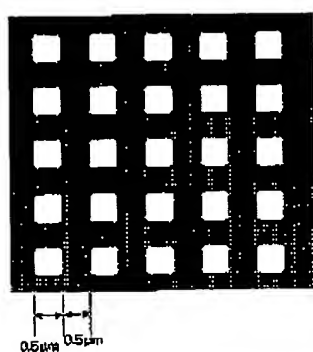
【図5】



【図6】



【図7】



【図8】



(11)

特開平11-283751

ーンプレートを形成している請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 上記回折格子又はゾーンプレートが遮光部分を持たないことを特徴とする請求項4、5、又は6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項8】 前記回折格子が二次元周期を持つことを特徴とする請求項1ないし7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正内容】

【0009】1. 陽極と陰極間に発光層を含む一層以上の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、素子界面での全反射を抑制する位置に回折格子又はゾーンプレートが構成要素として形成されていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】変更

【補正内容】

【0012】4. 上記陽極および陰極が同一面素を形成し、これら陽極又は陰極のうち、一方の電極が可視光を反射する電極であり、他方の電極上あるいは他方の電極と光の取出し面との間に、素子界面での全反射を抑制する位置に回折格子又はゾーンプレートが形成されていることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

【補正方法】変更

【補正内容】

【0013】5. 上記素子が透明基板、回折格子又はゾーンプレート、透明電極、有機層、反射電極の順に積層された構造を持つことを特徴とする上記4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

6. 上記素子において一方の電極が可視光を反射する電極であり、他方の電極自身が回折格子又はゾーンプレートを形成している上記4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014

【補正方法】変更

【補正内容】

【0014】7. 上記回折格子又はゾーンプレートが遮光部分を持たないことを特徴とする上記4、5又は6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0015

【補正方法】変更

【補正内容】

【0015】8. 前記回折格子が二次元周期を持つことを特徴とする上記1ないし7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。